

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 2003105098 A

(43) Date of publication of application: 09.04.03

(51) Int. Cl

C08J 5/00
C08K 3/00
C08K 7/04
C08L 23/00
C08L 27/12
C08L 101/00
H01B 1/20
H01M 8/02
// H01M 8/10

(21) Application number: 2001297288

(71) Applicant: MITSUBISHI PLASTICS IND LTD

(22) Date of filing: 27.09.01

(72) Inventor: MIYAGAWA MICHNARI

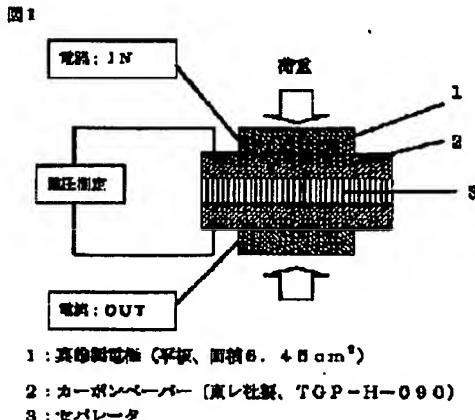
(54) THERMOPLASTIC RESIN MOLDED PRODUCT
WITH EXCELLENT CONDUCTIVITY

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a thermoplastic resin molded product showing an excellent conductivity, heat resistance and corrosion resistance.

SOLUTION: The thermoplastic resin molded product is prepared by adding an electroconductive additive to a thermoplastic resin and has a volume resistivity of at most 0.5 Ωcm.

COPYRIGHT: (C)2003,JPO



(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2003-105098
(P2003-105098A)

(43)公開日 平成15年4月9日(2003.4.9)

(51)Int.Cl.⁷
C 0 8 J 5/00
C 0 8 K 3/00
7/04
C 0 8 L 23/00
27/12

識別記号
C E R

F I
C 0 8 J 5/00
C 0 8 K 3/00
7/04
C 0 8 L 23/00
27/12

テマコード(参考)
4 F 0 7 1
4 J 0 0 2
5 G 3 0 1
5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 5 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001-297286(P2001-297286)

(71)出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(22)出願日 平成13年9月27日(2001.9.27)

(72)発明者 宮川 倫成

滋賀県長浜市三ツ矢町5-8 三菱樹脂株
式会社長浜工場内

最終頁に続く

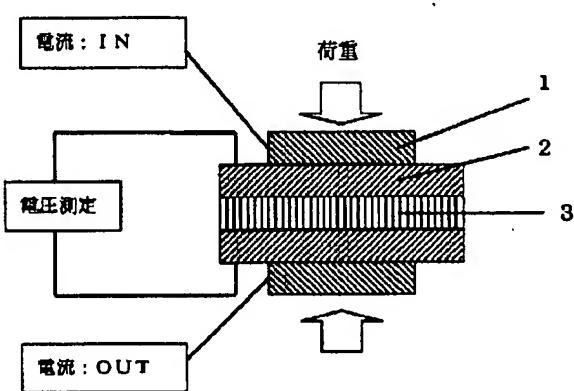
(54)【発明の名称】導電性に優れた熱可塑性樹脂成形体

(57)【要約】

【課題】導電性に優れ、耐熱性及び耐蝕性に優れた熱可塑性樹脂成形体を提供する。

【解決手段】熱可塑性樹脂に導電剤を含んでなる成形体であつて、その体積抵抗値が0.5Ω cm以下であることを特徴とする熱可塑性樹脂成形体。

図1



1 : 真鍮製電極(平板、面積6.45cm²)

2 : カーボンペーパー(東レ社製、TGP-H-090)

3 : セパレータ

【特許請求の範囲】

【請求項1】 熱可塑性樹脂に導電剤を含んでなる成形体であつて、その体積抵抗値が $0.5 \Omega \text{ cm}$ 以下であることを特徴とする熱可塑性樹脂成形体。

【請求項2】 前記熱可塑性樹脂がフッ素樹脂、フッ素ゴム、ポリオレフィン及びポリオレフィンエラストマーから選ばれてなることを特徴とする請求項1記載の熱可塑性樹脂成形体。

【請求項3】 前記導電剤が、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維から選ばれてなることを特徴とする請求項1又は2記載の熱可塑性樹脂成形体。

【請求項4】 熱可塑性樹脂成形体の厚みが $0.2 \text{ mm} \sim 2 \text{ mm}$ であることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項記載の熱可塑性樹脂成形体。

【請求項5】 熱可塑性樹脂と導電剤の割合が、熱可塑性樹脂／導電剤= $5/95 \sim 50/50$ （重量比）であることを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項記載の熱可塑性樹脂成形体。

【請求項6】 熱可塑性樹脂成形体が燃料電池用セパレータであることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項記載の熱可塑性樹脂成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、熱可塑性樹脂成形体に関するものであり、更には導電性に加え、耐熱性と耐蝕性に優れた熱可塑性樹脂成形体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 近代のエレクトロニクス分野において、高分子材料に求められる主要特性は製品や用途によって様々であるが、成形性、耐熱性、耐久性、高導電性、耐蝕性、リサイクル性であり、これらの要求を箇々に満足させる樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂等に代表される熱硬化性樹脂や、ポリフェニレンオキサイド、液晶ポリマー、ポリイミド、ポリカーボネート等に代表されるエンジニアリングプラスチック等が用いられている。

【0003】 しかしながら、上記に挙げた各機能を総合的に具備した材料に対する要望は強いものがあるが、技術的に困難であり、価格面で不利となることが多いという問題があった。そのような技術課題のひとつに導電性があり、更に耐熱性と耐蝕性を兼ね備えた高分子材料の開発が求められている。特に固体高分子型燃料電池を構成するセパレータは、固体高分子型燃料電池に使用されている高分子電解質がプロトン伝導性を有し、強い酸性を呈するため、高導電性と耐酸性が要求される。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、導電性に優れ、耐熱性及び耐蝕性に優れた熱可塑性樹脂成形

体を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明は上述の問題点を解消できる熱可塑性樹脂成形体を見出したものであり、その要旨とするところは、熱可塑性樹脂に導電剤を含む成形体であつて、その体積抵抗値が $0.5 \Omega \text{ cm}$ 以下であることを特徴とする熱可塑性樹脂成形体にある。上記熱可塑性樹脂がフッ素樹脂、フッ素ゴム、ポリオレフィン及びポリオレフィンエラストマーから選ばれてなることを含み、また、導電剤が、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維から選ばれてなること、熱可塑性樹脂成形体の厚みが $0.2 \text{ mm} \sim 2 \text{ mm}$ であること、熱可塑性樹脂と導電剤の割合が、熱可塑性樹脂／導電剤= $5/95 \sim 50/50$ （重量比）であること、及び熱可塑性樹脂成形体が燃料電池用セパレータであることを含んでいる。

【0006】

【発明の実施の形態】 以下、本発明を詳細に説明する。本発明の熱可塑性樹脂成形体に使用する熱可塑性樹脂としては耐薬品性の点からフッ素樹脂、フッ素ゴム、ポリオレフィン及びポリオレフィンエラストマーが好適に使用できる。フッ素樹脂、フッ素ゴムの具体例としては、PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）、PFA（テトラフルオロエチレン-バーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体）、FEP（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体）、EPE（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-バーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体）、ETFE（テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体）、PC

TFE（ポリクロロトリフルオロエチレン）、ECTFE（クロロトリフルオロエチレン-エチレン共重合体）、PVDF（ポリフッ化ビニリデン）、PVF（ポリビニルフルオライド）、THV（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体）、VDF-HFP（フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体）、TFE-P（フッ化ビニリデン-プロピレン共重合体）、

【0007】 含フッ素シリコーン系ゴム、含フッ素ビニルエーテル系ゴム、含フッ素フォスファゼン系ゴム、含フッ素熱可塑性エラストマーからなる少なくとも1種類以上のフッ素樹脂又はフッ素ゴムが使用できる。上記例示した樹脂では、成形性の点から特にフッ化ビニリデンを含むPVDF、THV、VDF-HFP及びTFE-Pが好ましい。

【0008】 ポリオレフィン及びポリオレフィンエラストマーの具体例としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリ4メチル1ペンテン、ポリヘキセン、ポリオクテン、

【0009】 水素添加スチレンブタジエンゴム、EPDM、EPM、EBMからなる少なくとも1種類以上のポ

3
リオレフィン及びポリオレフィンエラストマーが使用できる。上記例示した樹脂では、耐熱性、成形性の点から特にE P D Mが好ましい。

【0010】上記フッ素樹脂、フッ素ゴム、ポリオレフィン及びポリオレフィンエラストマーには導電剤を混合する必要があり、導電剤としては、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維が好適に使用できる。

【0011】カーボンとしては黒鉛、カーボンブラック、膨張黒鉛、炭素繊維、気相法炭素繊維、金属炭化物としては炭化タンクスチタン、炭化珪素、炭化カルシウム、炭化ジルコニウム、炭化タンタル、炭化チタン、炭化ニオブ、炭化モリブデン、炭化バナジウム、炭化クロム、炭化ハフニウム、金属酸化物としては、酸化チタン、酸化ルテニウム、酸化インジウム、酸化錫、酸化亜鉛、金属窒化物としては窒化クロム、窒化アルミニウム、窒化モリブデン、窒化ジルコニウム、窒化タンタル、窒化チタン、窒化ガリウム、窒化ニオブ、窒化バナジウム、窒化ホウ素、金属粉末としては、チタン粉、ニッケル粉、錫粉、銅粉、アルミ粉、亜鉛粉、銀粉タンタル粉、ニオブ粉、金属繊維としては、鉄繊維、銅繊維、ステンレス繊維が例示できる。上記の導電剤では、特に金属炭化物が導電性、耐酸性に優れていることから好適に使用できる。

【0012】熱可塑性樹脂成形体の厚みは、0.2 mm～2.0 mmの範囲であることが望ましい。熱可塑性樹脂成形体の厚みが0.2 mm未満では脆く、割れやすいため取り扱いにくいという問題が生じ易い。また、特に燃料電池セパレータに使用する場合は、厚みが2 mmを越えるとセパレータが厚く、燃料電池が大きくなるという問題がある。

【0013】熱可塑性樹脂と導電剤の割合は、熱可塑性樹脂／導電剤=5/95～50/50（重量比）、好ましくは熱可塑性樹脂／導電剤=10/90～40/60（重量比）が良い。熱可塑性樹脂の割合が、5未満では熱可塑性樹脂の割合が少ないので成形が困難となり、熱可塑性樹脂が50を越える場合では導電剤の割合が少ないので導電性に劣るという問題がある。

【0014】本発明の熱可塑性樹脂成形体の製造方法は特に限定されないが、通常の押出成形、ロール成形法、射出成形法又はトランクスファー成形法によればよい。また、燃料電池セパレータに使用する場合は、予め熱可塑性樹脂と導電剤を2軸押出機等で混合した後、押出成形、ロール成形法により、熱可塑性樹脂シートを製膜し、セパレータ形状の彫り込まれたプレス金型の雄金型と雌金型の間にシートを載置し、熱プレス法で突起部や溝部を形成する方法が生産性等の点から好ましい。熱プレス法の条件は、加熱温度120℃～300℃、圧力 $2.9 \times 10^6 \text{ Pa}$ ～ $14.7 \times 10^6 \text{ Pa}$ (30 kg f/cm^2 ～ 150 kg f/cm^2) 程度にて行なえば

よい。

【0015】以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【実施例】【実施例1】フッ素樹脂（「住友スリーエム（株）」製 THV220G）10重量部と導電性フィラー（炭化タンクスチタン 「（株）アライドマテリアル」製 WC20）90重量部を2軸押出機（押出機温度250℃）にて混合した。作成した混合物を、単軸押出機（押出機温度250℃）にて口金から押し出しシートを作成した。得られた成形体の厚みは1.0 mmで、体積抵抗値は $0.010 \Omega \text{ cm}$ であった。

【0016】【実施例2】実施例1で得られたシートを、セパレータ形状が彫り込まれたプレス金型の雄金型と雌金型の間に載置し熱プレス法にて燃料電池セパレータを作成した。熱プレス法の条件は、加熱温度220℃、圧力 $14.7 \times 10^6 \text{ Pa}$ (150 kg f/cm^2) であった。得られた燃料電池セパレータの最大厚みは1.2 mm、最小厚みは0.4 mmであった。

【0017】得られた上記のセパレータを用いて接触抵抗を測定した。接触抵抗の評価は以下のように行った。測定結果を図2のNo.1サンプルで示した。

1. 測定装置

抵抗計：YMR-3型（（株）山崎精機研究所社製）

負荷装置：YSR-8型（（株）山崎精機研究所社製）
電極：真鍮製平板2枚（面積1平方インチ、鏡面仕上げ）

2. 測定条件

方法：4端子法

印加電流：10 mA（交流、287 Hz）

30 開放端子電圧：20 mVピーク以下

接触荷重： $0.9 \times 10^6 \text{ Pa}$

$1.8 \times 10^6 \text{ Pa}$

$4.5 \times 10^6 \text{ Pa}$

$9.0 \times 10^6 \text{ Pa}$

$18 \times 10^6 \text{ Pa}$

カーボンペーパー：東レ社製TGP-H-090（厚み0.28 mm）

【0018】3. 測定方法

図1に示した測定装置により測定した。

40 【0019】上記方法で評価したセパレータの接触抵抗値を図2のグラフに示した。比較のために東海カーボン社製樹脂含浸黒鉛G347B（No.2）も評価した。

【0020】図2のグラフに示す通り、フッ素樹脂10重量部と導電性フィラー（炭化タンクスチタン）90重量部からなる燃料電池セパレータNo.1は、No.2の樹脂含浸黒鉛とほぼ同等の接触抵抗値であった。

【0021】

【発明の効果】上述したように、本発明の熱可塑性樹脂成形体は、導電性が高く、耐熱性と耐蝕性を兼ね備えた高分子材料である。特に、電極との接触抵抗が小さく、

耐食性に優れ、比較的低成本で生産可能なことから、長時間の運転が可能な燃料電池用としての利用性が大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】接触抵抗の測定方法を示す装置の概略図。

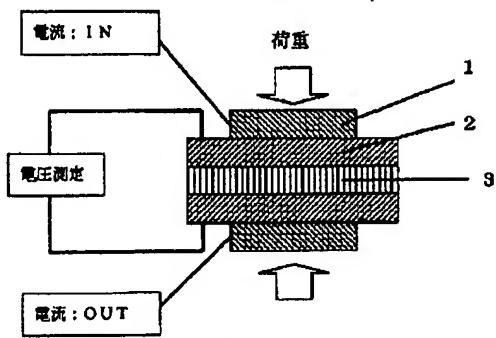
【図2】接触荷重と接触抵抗値の関係を示すグラフ。

【符号の説明】

- 1 : 真鍮製電極
- 2 : カーボンペーパー
- 3 : セパレータ

【図1】

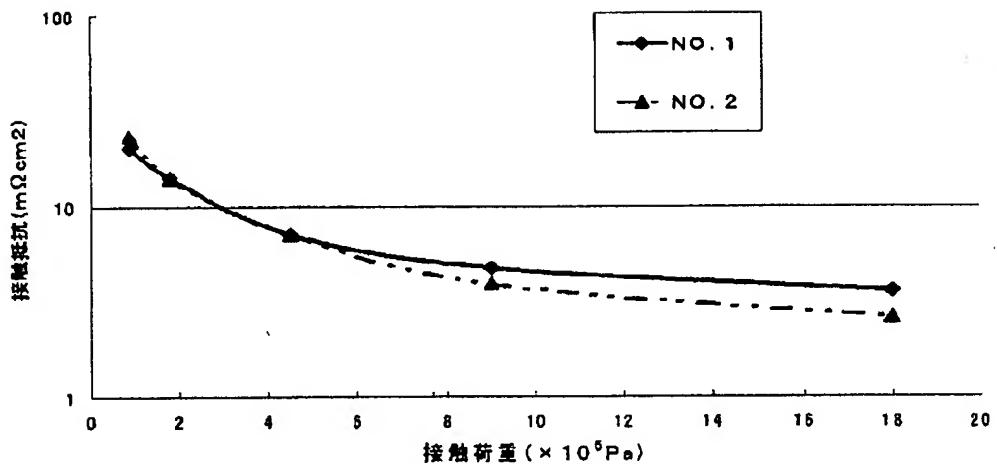
図1



1 : 真鍮製電極 (平板、面積 6.45 cm²)
 2 : カーボンペーパー (東レ社製、TGP-H-090)
 3 : セパレータ

【図2】

図2



フロントページの続き

(51) Int.CI.7

識別記号

F I

マーク (参考)

C 0 8 L 101/00

C 0 8 L 101/00

H 0 1 B 1/20

H 0 1 B 1/20

Z

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

B

// H 0 1 M 8/10

8/10

F ターム(参考) 4F071 AA13 AA15 AA20 AA21 AA26
AB03 AB06 AB11 AB18 AB22
AD01 AE15 AF02 AF37 AF45
AH15 BA01 BB03 BB05 BB06
BC01 BC07
4J002 AC081 BB031 BB121 BB151
BD121 DA026 DA036 DA066
DB016 DE096 DF016 FA046
FD116 G002
5G301 DA02 DA18 DA22 DA23 DA24
DA42 DA43 DA47 DD10
5H026 AA06 CX02 EE02 EE11 EE12
EE18 HH03 HH05